界面破壊力学

5. 複合材料のミクロ損傷力学†

武 田 展 雄* 荻 原 慎 二**

Fracture Mechanics with Bonding or Contacting Interfaces

V : Microscopic Damage Mechanics of Composites

by

Nobuo TAKEDA* and Shinji OGIHARA**

Key words : CFRP, GFRP, Composites, Transverse crack, Delamination, Debonding, Micro-line/grid method, Crack opening displacement, Thermal residual stress, Interlaminar shear deformation

1 緒 言

繊維強化複合材料は航空・宇宙分野をはじめ応用が広がっており、用途に応じた複合材料が開発されている。新しい複合材料が開発された場合、測定が容易なマクロな剛性、強度特性や耐熱特性のみが報告されることが多く、構造設計者はこのデータのみをもとに構造設計を行うことになる。ところが、新規複合材料開発においては、基材であるマトリックス（母材）と強化材である繊維との相互作用や界面（または界面層）挙動を含むミクロな変形・破壊特性の方がより重要な材料設計因子であるにもかかわらず、実験技術の不備から報告は数少ない。

これに対し、対応するマイクロメカニクスの理論解析^{1)~4)}は比較的進んでいるように見られるが、その実験的検証は困難であった。すなわち、複合材料の変形、破壊に関する解析モデルが多く提案されるものの、実際に適用可能なモデルの選択は困難なのが現状である。

現実の複合材料の繊維、マトリックス、繊維・マトリックス界面（層）が負荷過程にいかに変形し、損傷していくかを明らかにする実験技術を実現することにより、現実の微視的破壊プロセスやメカニズムが解明でき、より現実合う微視的モデリングや理論解析法も構築できると考えられる。

このような考えに基づき、筆者らは繊維強化複合材料について、その微視的変形・損傷挙動を実験的に明らかにする研究を行ってきた。^{5)~16)} 本稿では、そのうち、フォトリソグラフィ法を利用し材料表面に微小細線・格子を作製し、それにより微視的変形を定量化し、また微視的損傷を可視化する手法^{9)~14)}とその適用例を紹介する。適用例としては、トランスバースクラックおよび層間はく離を有するCFRP積層板の微視的変形¹³⁾、トランスバースクラックを有する層間高じん性化CFRP積層板の微視的変形^{10), 14)}、ガラス短繊維強化ナイロン6複合材料中

の繊維の変形^{11), 12)}について紹介する。

2 微小細線・格子法^{9)~14)}

筆者らはフォトリソグラフィ法を応用し微小細線・格子を材料表面に作製し、負荷下その場観察を行うことにより微視的変形・損傷を可視化する方法を用い、微小細線・格子法と呼んでいる。図1に微小細線・格子の作製法を示す。(a) まず、試験片表面を研磨し、(b) 表面に光化学反応性の樹脂（ポジ型フォトレジスト）を塗布、レジスト硬化のため80℃で加熱する。(c) レジスト硬化後、微小細線・格子模様の刻みであるガラス板（フォトマスク）を通して露光する。(d) その後、現像を行い露光した部分のレジストを取り除き、(e) 試験片表面に金属膜を真空蒸着した後、(f) レジストを有機溶剤で取り去ることにより金属膜の微小細線・格子を得る。

微小細線・格子を作製した試験片について、負荷装置付走査型電子顕微鏡（SEM）や光学顕微鏡を用いて負荷下その場観察を行い、微視的変形・損傷挙動を観察する。作製した微小細線・格子をマーカーとすることで、荷重負荷前後の顕微鏡写真から、各点の変位を計測することができる。この測定精度は、微小細線・格子のサイズよりも観察方法（用いる顕微鏡の種類など）に依存するものと考えられる。本稿の範囲では、測定精度は0.1μm程度であると考えている。次節以降で、この方法の具体的な適用例を示す。

3 トランスバースクラックおよび層間はく離を有するCFRP積層板の微視的変形¹³⁾

3・1 材料および実験方法

実験材料は高強伸度型CFRP、T800H/3631を用いた。積層構成は $[0/90_n]_s$ ($n=2, 4, 6$) のクロスプライ積層板とした。これらの積層板ではその引張負荷過程に90°層のトランスバースクラックおよび、その先端から0/90層界面に層間はく離が発生することがわかっている。この

† 原稿受理 平成11年9月1日 Received Sep. 1, 1999

* 正 会 員 東京大学大学院新領域創成科学研究科先端エネルギー工学専攻 〒113-0033 東京都文京区本郷, Dept. of Advanced Energy, Graduate School of Frontier Sciences, The Univ. of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-0033

** 正 会 員 東京理科大学理工学部機械工学科 〒278-8510 野田市山崎, Dept. of Mech. Eng., Science Univ. of Tokyo, Yamasaki, Noda, 278-8510

試験片表面に格子サイズ $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ 、間隔 $2\mu\text{m}$ の微小格子を作製した。

図2に示すような、光学顕微鏡のステージに取り付け可能な荷重装置を作製し、引張荷重を与えながら試験片表面の観察を行った。この荷重装置は、ヒーターにより、試験片の温度を変化させることも可能である。

3・2 結果および考察

図3はT800H/3631[0/90]₂積層板において観察されたトランスバースクラック先端付近の光学顕微鏡写真である（積層板応力 $\sigma = 540\text{MPa}$ ）。トランスバースクラックは0/90界面で停止していることがわかる。さらに荷重を増加させると、トランスバースクラック先端から0/90界面での層間はく離の発生・進展が観察される。図4はT800H/3631[0/90]₂積層板（積層板応力 $\sigma = 570\text{MPa}$ ）

において観察された層間はく離である。

本研究では、まず積層板の荷重による積層板中央面と0/90界面の各点の荷重方向（0°方向）変位を測定した。図5はトランスバースクラックおよび層間はく離を有する積層板の荷重方向変位とトランスバースクラックの midpointからの距離の関係を示したものである。図中 $2L$ はトランスバースクラック間隔、 d は層間はく離長さを示している。層間はく離のない領域では0/90界面の変位はほぼ線形関係になっていることがわかる。また、積層板中央面での変位は小さいことが明らかになった。層間はく離領域で変位はほぼ一定になっており、これはこの領域で応力（引張荷重による応力と熱残留応力）がゼロになっていることを示している。

図5には、解析による予測も示している。解析モデル

図1 微小細線・格子の作製手順

図2 その場観察用荷重装置

図3 T800H/3631 [0/90]₂ 積層板の90°層に発生したトランスバースクラック

図4 T800H/3631 [0/90]₂ 積層板のトランスバースクラック先端より発生した層間はく離

には McCartney によるモデル⁴⁾、Lee らのモデル³⁾を基に熱残留応力を考慮したもの¹⁰⁾を用いた。層間はく離の考慮はその領域での 90° 層応力をゼロとおくことで本研究で行ったものである。概して McCartney モデルが実験結果とよい一致を示すようである。

図 6 は作製した負荷装置のヒーターを用い、試験片温度を 70°C とした場合の室温と 70°C におけるトランスバースクラックのき裂開口変位を解析モデルと比較したものである。70°C においてき裂開口変位が減少する傾向が解析によりよく予測されている。

図 5 0/90 界面および積層板中央面における荷重方向変位。T800H/3631 (a) [0/90]_s, (b) [0/90]_{4s}, (c) [0/90]_{6s}。

図 6 トランスバースクラックのき裂開口変位 (T800H/3631 [0/90]_{4s})

4 トランスバースクラックを有する層間高じん性化 CFRP 積層板の微視的変形^{10), 14)}

4.1 材料および実験方法

積層板に特有な微視的損傷として、前節に示したような、トランスバースクラックと層間はく離がある。このうち、層間はく離は、積層板の剛性を著しく低下させ、また、圧縮強度を低下させることから問題視されている。特に、CFRP の場合横衝撃荷重により、容易に層間はく離が発生してしまうことから、層間破壊じん性を向上させる試みが多く行われている。

これらのうち、層間に意図的に樹脂層を形成させ、層間のじん性を高めようと研究、開発されているのが層間高じん性化積層板である。層間高じん性化 CFRP 積層板については層間樹脂やその厚さについて検討が行われている。^{17)~19)} また、東レによって層間にポリアミドの粒子を含む層間樹脂層を形成する材料 T800H/3900-2 が開発されている。^{20), 21)} これらの材料については、層間破壊じん性あるいは衝撃後圧縮 (CAI) 強度の向上が報告されているものの、面内負荷によるトランスバースクラックは発生する。そこで本研究では、微小細線・格子法により、トランスバースクラックを有する層間高じん性化 CFRP 積層板の微視的変形を評価した。

実験材料は、プリプレグに T800H/3631 を用い、0/90 層間にエポキシ樹脂である FM300 層 (厚さ約 100μm) を挿入した T800H/3631-FM300、およびポリアミド粒子分散エポキシ層 (厚さ約 30μm) を各層間にはさんだ粒子層間強化型 T800H/3900-2 の 2 種類である。積層構成は [0/90]_{2s} のクロスプライ積層板を用いた。

試験片端面に積層方向と直角方向に微小細線を作製した。油圧サーボ式負荷装置付電子顕微鏡内で引張試験中の層間領域の微視的変形状態を観察した。室温で荷重を増加し、90° 層にほぼ均等にき裂が生じた時点で荷重を一定に保持し、き裂先端部およびき裂全体を写真撮影する。同じ要領で、120°C、160°C についても写真撮影を行う。この写真より、90° 層のき裂開口変位、および、き裂先端付近の 90° 層内の層間せん断ひずみ分布を測定す

る。図7には、90°層にトランスバースクラックが発生した層間高じん性化積層板の変形の模式図を示す。

4・2 結果および考察

図8はT800H/3631-FM300の各温度におけるせん断変形とトランスバースクラック先端からの距離の関係を示す(積層板応力 $\sigma = 296\text{MPa}$)。160℃での層間樹脂層における平均せん断変形が他の温度におけるものに比較し大きくなっていることがわかる。これはFM300のせん断弾性係数が120℃と160℃の間で大きく低下することによると考えられる。また、層間樹脂層(Interlaminar Resin Layer, IRL)における平均せん断変形は90/IRL界面でのせん断変形より大きいことがわかる。図8にはまた、せん断変形に対する解析予測の結果も示す。解析には図9の模式図に示すCase (b) (トランスバースクラックがIRLを貫通し0°層との界面に達している場合)のモデルを使用した。

図7 層間高じん性化積層板のトランスバースクラック先端付近の変形模式図

図8 T800H/3631-FM300におけるせん断変形とトランスバースクラック先端からの距離の関係

図9 トランスバースクラックを有する層間高じん性化積層板の解析モデル
(a) トランスバースクラック先端が90/IRL界面上にある場合
(b) トランスバースクラック先端がIRL/0°界面上にある場合

図10 T800H/3631-FM300におけるトランスバースクラックき裂開口変位の厚さ方向変化

図 10 には, T800H/3631-FM300 における, 各温度下におけるトランスバースクラックのき裂開口変位 (COD) の厚さ方向変化を示す (積層板応力 $\sigma = 296\text{MPa}$). 実験結果においては, COD の温度依存性は小さい. これは, 温度上昇による層間樹脂層のせん断弾性率低下と 90° 層の熱残留応力低下の効果が相殺し合うことによるものと考えられる. 図 10 には図 9 に示す, Case (a) (トランスバースクラックが $90^\circ/\text{IRL}$ 界面で停止している場合) と Case (b) 両方のモデルを用いた解析予測も示している. 実験結果は両解析モデルの中間にある. 実際にはトランスバースクラックは IRL にある深さ進展しているので, これらのモデルの中間にあると考えられる.

図 11, 12 にはそれぞれ, T800H/3900-2 における, せん断変形, トランスバースクラックの COD を示す (積層板応力 $\sigma = 160\text{MPa}$). おおむね, 図 8, 10 と同様の傾向が見られた.

図 11 T800H/3900-2 におけるせん断変形とトランスバースクラック先端からの距離の関係

図 12 T800H/3900-2 におけるトランスバースクラックき裂開口変位の厚さ方向変化

5 ガラス短繊維強化ナイロン 6 複合材料中の繊維の変形^{11), 12)}

5.1 材料および実験方法

使用した材料は, 異なる 4 種類の繊維表面処理を施したランダム配向ガラス短繊維強化ナイロン 6 複合材料である. 繊維表面処理が接着剤のみの A 材とカップリング剤と助剤が同一で接着剤が異なる 3 種 (B, C, D 材) のガラス短繊維を繊維重量含有率が 10% になるように射出成形したものを用いた.

この試験片表面に微小格子を作製し, 引張負荷前後の微小格子の間隔から着目した繊維の軸方向ひずみを求めた.

5.2 結果および考察

微小格子法により, 繊維一本のひずみ分布を求めた結果を図 13 に示す. 縦軸は軸方向のひずみ, 横軸は繊維の長さ方向の位置を表している. 接着剤, 助剤, カップリング剤で繊維表面処理を行った B 材は図 13 (a) に示すように引張応力の増加に伴い繊維のひずみも高い値まで増加している. これは, 繊維・マトリクス界面ではく離が生じず, 応力が繊維に十分伝達されていることを示す. これに対して, 接着剤のみで繊維表面処理を行った A 材では, 図 13 (b) に示すように, 引張応力が 27MPa までは引張応力の増加に伴い, 繊維ひずみも増加している. しかし, 引張応力が 33MPa 以上では繊維ひずみが減少している. これは, この応力を境に, 界面はく離が生じ, 応力が繊維に十分伝達されていないことを示唆している. 図 14 には, 実験で得られた繊維ひずみと修正シアラグ解析による予測との比較を示す. 修正シアラグ解析におけるせん断域寸法は微小細線・格子法により測定された $16.25\mu\text{m}$ を用いている. これより, 界面はく離を生じる

(a) B材, 応力=21, 32, 40MPa

(b) A材, 応力=19, 27, 33, 38MPa

図 13 短繊維の軸方向ひずみ分布

図 14 短繊維の軸方向ひずみ分布の実験結果と修正シアラグ解析の比較

までは、実験結果とシアラグ解析による予測はほぼよい一致を示すことがわかる。

6 ま と め

筆者らによる微小細線・格子法の複合材料への適用に関する最近の成果を紹介した。

微小細線・格子法と負荷下その場観察により、CFRP クロスプライ積層板の負荷中のトランスバースクラック裂先端近傍の局所的変位場、損傷状態を可視化した。トランスバースクラックのみでなく層間は離が発生した場合でも適用可能であることを示した。

層間高じん性化 CFRP 積層板について、トランスバースクラックが発生した場合の微視的変形を定量化した。これを基礎に筆者らは層間高じん性化 CFRP 積層板のト

ランスバースクラック進展挙動モデルの構築を行っている。^{15), 16)}

さらに、ガラス短繊維強化複合材料中の繊維の変形に着目した。繊維表面処理と変形・微視的損傷発生の関係を検討することで短繊維強化複合材料の開発へのフィードバックが期待される。

参 考 文 献

- 1) Z. Hashin, Mech. Mater., **4**, 121 (1985).
- 2) J. Nairn, J. Comp. Mat., **23**, 1106 (1989).
- 3) J. W. Lee, D. H. Allen and C. E. Harris, J. Comp. Mat., **23**, 1273 (1989).
- 4) L. N. McCartney, J. Mech. Phys. Solids, **40**, 27 (1992).
- 5) N. Takeda and S. Ogihara, Comp. Sci. Tech., **52**, 183 (1994).
- 6) N. Takeda and S. Ogihara, Comp. Sci. Tech., **52**, 309 (1994).
- 7) N. Takeda and S. Ogihara, Comp. Sci. Tech., **54**, 394 (1994).
- 8) S. Ogihara, N. Takeda and A. Kobayashi, Comp. Sci. Tech., **57**, 267 (1997).
- 9) N. Takeda, H. Niizuma, S. Ogihara and A. Kobayashi, Exp. Mech., **37**, 182 (1997).
- 10) 荻原慎三, 鈴木信彦, 武田展雄, 小林 昭, 材料システム, **16**, 135 (1997).
- 11) 荻原慎三, 武田展雄, 宋 東烈, 中田数夫, 小泉浩二, 小林 昭, 材料, **46**, 1090 (1997).
- 12) N. Takeda, S. Ogihara, K. Nakata and A. Kobayashi, Composite Interfaces, **5**, 305 (1998).
- 13) N. Takeda, S. Ogihara, S. Suzuki and A. Kobayashi, J. Comp. Mat., **32**, 83 (1998).
- 14) N. Takeda and S. Ogihara, Composites Part A, **29**, 1545 (1998).
- 15) S. Ogihara, N. Takeda and A. Kobayashi, Adv. Comp. Mat., **7**, 151 (1998).
- 16) S. Ogihara, N. Takeda and A. Kobayashi, Adv. Comp. Mat., **7**, 347 (1998).
- 17) E. Altus and O. shai, Comp. Sci. Tech., **39**, 13 (1990).
- 18) A. Askoy and L. A. Carlsson, Comp. Sci. Tech., **43**, 55 (1992).
- 19) F. Ozdil and L. A. Carlsson, Engng. Fract. Mech., **41**, 645 (1992).
- 20) N. Odagiri, T. Muraki and K. Tobukuro, Proc. 33rd Int. SAMPE Symp., Covina, 272 (1988).
- 21) N. Odagiri, H. Kishi and T. Nakae, Proc. Amer. Soc. Comp. 6th Tech. Conf., 43 (1991).